

CW 近赤外線レーザを用いた分光システムと信号処理

西 宮 信 夫*, 行 谷 時 男†, 鈴 木 正 夫‡,
坂 口 直 史§, 大 村 和 久¶, 大 塚 智 昭||

High-Resolution Spectrophotometric System Using CW Near Infrared Lasers and Signal Processing

Nobuo NISHIMIYA, Tokio YUKIYA, Masao SUZUKI, Naoshi SAKAGUCHI,
Kazuhisa OHMURA, and Tomoaki OHTSUKA

In order to analyze spectral lines in the near infrared wavelength region, computer controlled laser spectrometers with higher resolving power and precision than the classical ones were developed using a GaAs semiconductor laser and a titanium sapphire ring laser. The systems operated in the wavelength region from 0.68 to 1.05 μm and at 1.3 μm . The lasers were automatically swept over several hundreds of wavenumber with a resolution better than several MHz. The accuracy of the wavenumber measurement achieved using a wavelength meter combined with a Fabry-Perot interferometer was 0.0005 cm^{-1} . A novel double beam noise reduction technique was developed to eliminate interference noises and a noise reduction ratio of 50 dB was attained.

1 はじめに

近赤外線領域は光計測や光通信において近年とみに重要となった領域であるが、強い吸収スペクトルや発光スペクトルが検出されなかったため、この領域の光検出技術や分光技術が成熟せず、1930~40年代の古典的な分光データが主流を占め、分光データの蓄積、理論の発展が遅れていた。しかし近赤外線領域の連続波長可変光源である GaAs 半導体レーザやチタンサファイアレーザの開発により、近年では状況が一変した。特に、GaAs 半導体レーザ装置については 1980 年代より、分光学的手法を用いた周波数制御や外部共振器に回折格子などを用いた光帰還制御、マイクロ波通信技術として確立しているヘテロダイン法を駆使して、その超コヒーレンス化、超広帯域周波数マーカの発生、超高分解能周波数掃引技術が開発され、周波数分解能や出力レベルの安定度が向上してきている^{1), 2)}。光通信の分野では、周波数多重化など新しい光通信方式を実現する上でも、レーザ光源の小型化とコヒーレンス性のさらなる向上が望まれている。このような背景のもとで、不確定性原理に基づく量

子限界まで周波数精度や光検出感度を追求する上で、分光学的手法を駆使したレーザ制御技術を発展させることは重要である。

レーザ分光は原子や分子の構造を解明する有力な手段と見なされてきたのであるが、光周波数制御の観点からも重要な研究である。この領域のレーザを汎用分光装置として機能させ分光計測を行なうとともに、量子論に基礎をおく解析法を確立することは、今後の近赤外線領域における光計測技術を飛躍的に発展させる上で不可欠な研究である。

本研究では、分光計測において基本的で且つ重要な技術である「波数掃引」、「信号検出」、「波数較正」について実現したシステムおよびその手法を説明する。次にこれらの技術を駆使し、サブドップラー幅二重共鳴分光、ハロゲン化沃素分子の電子スペクトルの測定例を示す。

2 近赤外線可変波長レーザ分光システムおよび信号処理

本研究では、GaAs 半導体レーザおよびチタンサファイアレーザを用いて、分光計測システムを構築した。GaAs 半導体レーザは、カバーできる波数範囲が十数~百数十 cm^{-1} に限定されている。そこで、主に広帯域波数掃引を必要としない光-光二重共鳴効果の測定に使用

* 本学電子工学科助手

† 本学情報処理センター助手

‡ 本学電子工学科教授

§ (株)ニコン

¶ (株)浜松ホトニクス

|| 水電妻工業 (株)

1997 年 9 月 17 日 受理

することを目的とした。

一方、チタンサファイアレーザは広い範囲の波長領域をカバーすることができる。本研究で使用したコヒーレント社のリング共振器型チタンサファイアレーザ (Model 899-21) は $0.68 \sim 1.05 \mu\text{m}$ の範囲をカバーでき、広帯域に亘ってスペクトルが存在するハロゲン化沃素分子の電子遷移³⁾⁻⁸⁾などを対象にする時には有利である。そこで、このリング型のチタンサファイアレーザを用いて、効率的に且つ広帯域に亘って波数掃引するために「チタンサファイアレーザを用いた広帯域波数掃引システム」を開発した。

分光計測によりスペクトル波形から得られる情報は、(1) ピーク波数の位置、(2) 強度、(3) 半値幅、(4) スペクトルプロファイル などである。これらの情報をより正確により忠実に取り出すには、信号対雑音比 (S/N 比) の向上が重要である。そこで、波源変調法 (Source Modulation Method) を採用し位相検波による雑音除去法と数値演算による雑音除去法を併用した。特に微分信号を雑音処理する時に生じる問題点について述べ、本研究で考案した数値演算処理によるダブルビーム雑音除去法について説明する。そして、標準スペクトルが殆んど存在しない未知の波長領域において大変有効である光波長計を用いた「数値演算による波数測定および較正法」について述べる。

2.1 GaAs 半導体レーザ分光システム

GaAs 半導体レーザは、注入電流による直接変調が可能であり、注入電流や動作温度の変化により周波数掃引が容易に達成できる。発振線幅は数 MHz であり、ドップラー幅分光、サブドップラーフリーの分光計測光源として、十分に使用できる性能を持ち合わせている。また、レーザ自体の光学的な調整の必要もなく、扱いが大変簡便である。そこで、山口、鈴木等により報告されているシステム^{9), 10)}をデジタル制御できるように改良した。その詳細は、分光研究¹¹⁾および本学紀要¹²⁾に記述した。GaAs 半導体レーザの連続波数掃引範囲は、注入電流による場合は $1 \sim 2 \text{ cm}^{-1}$ 、温度掃引による場合は $2 \sim 5 \text{ cm}^{-1}$ 程度である。そこでモードホップなどによって不連続となったスペクトルデータを計算機の Disk に記録し、次いでこれをコンパイルし、連続データとして取り扱うためのソフトウェアも構築した。このシステムは主に $0.77 \sim 0.85 \mu\text{m}$ 領域の二重共鳴スペクトルの測定、 $1.385 \mu\text{m}$ の振動回転スペクトルの測定に使用した。

2.2 チタンサファイアレーザを用いた広帯域波数掃引分光システム

構築したチタンサファイアレーザを用いた広帯域波数掃引システムの構成図を図 1 に示す。チタンサファイ

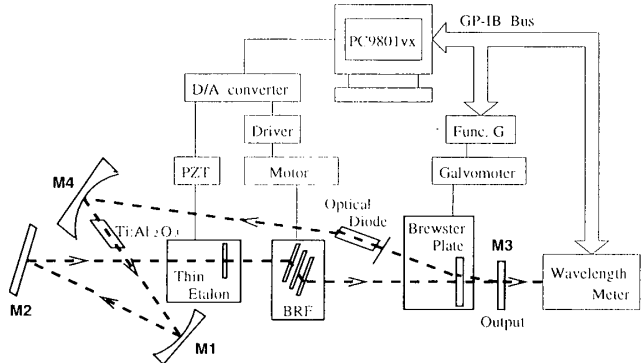


図 1: System Block Diagram of a Titanium Sapphire Laser Spectrometer.

アレーザはコヒーレント社製 Model 899-21 を使用した。このシステムで、発振スペクトルを単一モード動作させ、線幅を狭窄化し、かつ周波数を掃引するには、BRF, Thin Etalon および Brewster Plate の三つの素子を最適位置に調整する。次いで Brewster Plate を掃引信号で回転させリング共振器長を変化させることにより、波数掃引が実現できる。

図 2 に各素子を駆動するための制御信号 (上段) およびそれに伴う波長変化量 (下段) のタイムチャートを示す。(a) は Brewster Plate 駆動用の Galvo Motor に印加する鋸歯状波およびこれに対応して生じる波長変化を示す。±5 V の変化に対し 0.06 nm の波長変化が得られる。(b) には Thin Etalon を駆動するステップ信号と波長変化を示す。1 ステップ当たり 約 0.04 nm ずつ移動させ、全部で 0.5 nm 変化するまで行なう。(c) には BRF の駆動の様子を示す。BRF は DC Servo Motor により回転させる。この動作を (a)→(b)→(c)→(a)・・・とトラッキングをとりながら順次繰り返すことにより、680 ~ 1050 nm の波長範囲で連続して掃引を行なう制御システムを構築した。

回転準位の微細構造が多数現われる振動回転スペクトルを測定する場合に用いるシステム構成図を図 3 に示す。測定信号は、試料セルにより生じるスペクトル信号、パワーリファレンス信号、波数マーカーとして用いるフリンジ信号、波長計による波数データの 4 種類である。Brewster Plate を駆動する Galvo Motor に交流信号を加えることによって 50 ~ 300 MHz の FM 変調幅を得ている。これは、共振器長を機械的に変化させることによって FM 変調を行なっているので、変調周波数は制御系の応答速度と Galvo Motor に十分に応答する 15

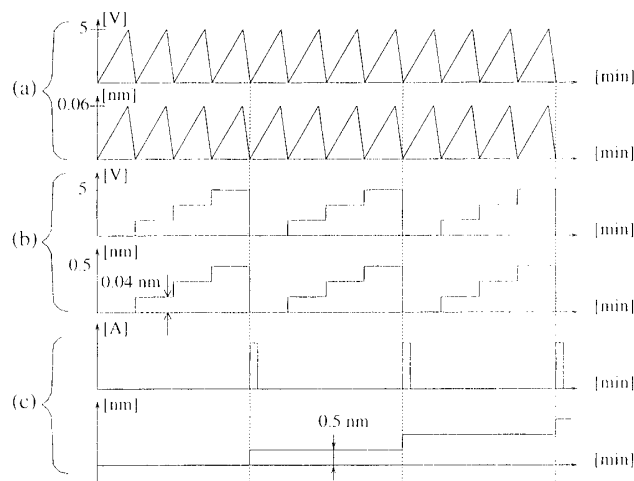


図 2: Time Chart of Control Signals (upper) and Change of the Wavelength (under). (a)Galvo motor, (b) Thin Etalon, (c) BRF.

Hz とした。PIN フォトダイオードにより検出した信号をロックインアンプにて位相敏感検波し、GP-IB バスを通しコンピュータに転送し Disk に記録した。連続波数掃引システムと組み合わせて、終日運転させると約 $60 \text{ cm}^{-1}/\text{日}$ の速度で測定波数領域のスペクトルを自動計測できた。

2.3 数値演算法によるダブルビームノイズキャンセリング

波源変調法は微弱な吸収信号を検出するに当たり、背景雑音を除くことができ、また、スペクトル密度が濃い場合でもピーク位置を特定しやすいなどの利点がある。しかし、雑音の持つ周波数成分がスペクトルの形状を構成する周波数成分に近い場合、この方法で除くことはできず、さらにそれが変調幅程度の周期性を持つ雑音の場合は、却って強調される。そこで、波源変調法によりスペクトル信号を2次微分信号として検出した後に、さらに雑音処理を施す方法として、コンピュータを利用した数値演算法によるダブルビームノイズキャンセリング法を新たに考案した。吸収信号の周期成分が、干渉ノイズ等の周期成分に近い値をとる場合は、第一段階として、ダブルビームノイズキャンセリング法で除き、次に残りの成分をFFTを用いた雑音除去法である周波数領域法¹³⁾で除く。この二つの手法を組み合わせ大きくS/N比を改善することができた。

ダブルビームノイズキャンセリング法では、吸収スペクトルとともに検出される背景ノイズを数値演算処理によって減じるわけだが、吸収信号の検出回路と光出力モニター回路の「光信号-電圧変換係数 α 」を求めねば

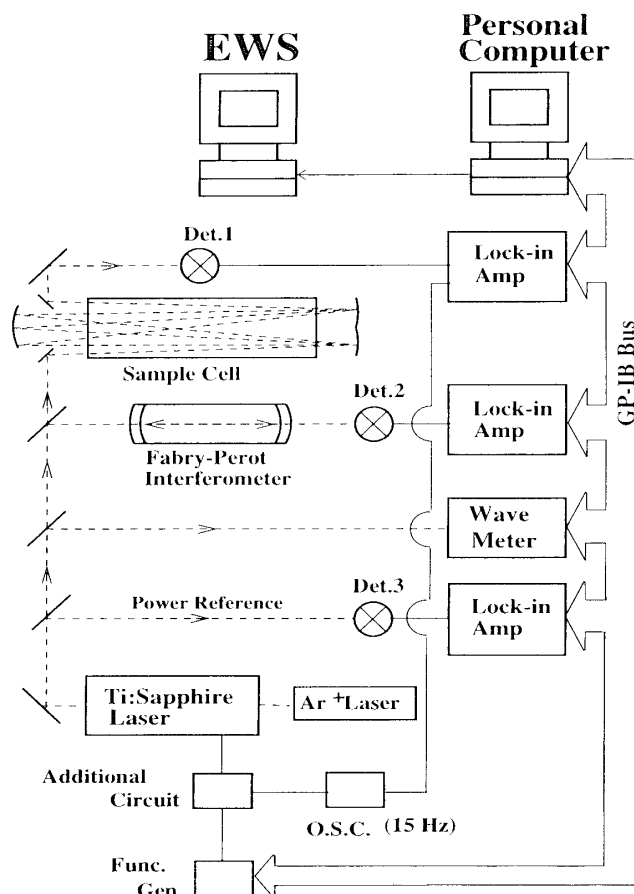


図 3: Continuous Wavelength Sweeping Spectrometer with a Titanium Sapphire Laser.

ならない。吸収信号 $I(\nu)$ の2次微分信号からリファレンス信号 $I_{ref}(\nu)$ の2次微分信号に α を乗じた式を引くと、

$$\begin{aligned} \frac{d^2 I(\nu)}{d\nu^2} - \frac{d^2 I_{ref}(\nu)}{d\nu^2} \times \alpha \\ \simeq -I_0(\nu) \frac{d^2 k(\nu)}{d\nu^2} - 2 \frac{dI_0(\nu)}{d\nu} \frac{dk(\nu)}{d\nu} \end{aligned} \quad (1)$$

となる。 $k(\nu)$ は吸収係数を表す。第2項は残差項であるが、スペクトルの中心では $dk(\nu)/d\nu=0$ なので、この項の寄与は小さいと考えることができる。

吸収光路長を変えて測定したICI分子の 13917 cm^{-1} 付近の吸収スペクトルを図4, 5に示す。図4は吸収光路長 12 m の場合であり、図5は吸収光路長 20 cm の場合である。(a) はビデオ信号, (b) は波源変調法による吸収信号, (c) はレーザパワーリファレンス信号, (d) は本方法により差分を取って干渉ノイズを除去した結果である。(e) は周波数領域法によりノイズを除去した最終結果である。図4と図5の最終結果であるトレース(e)をそれぞれ比較すると同じ形状のスペクトルが検出されることが分かる。両者を比較し S/N 比は 50 dB 改善さ

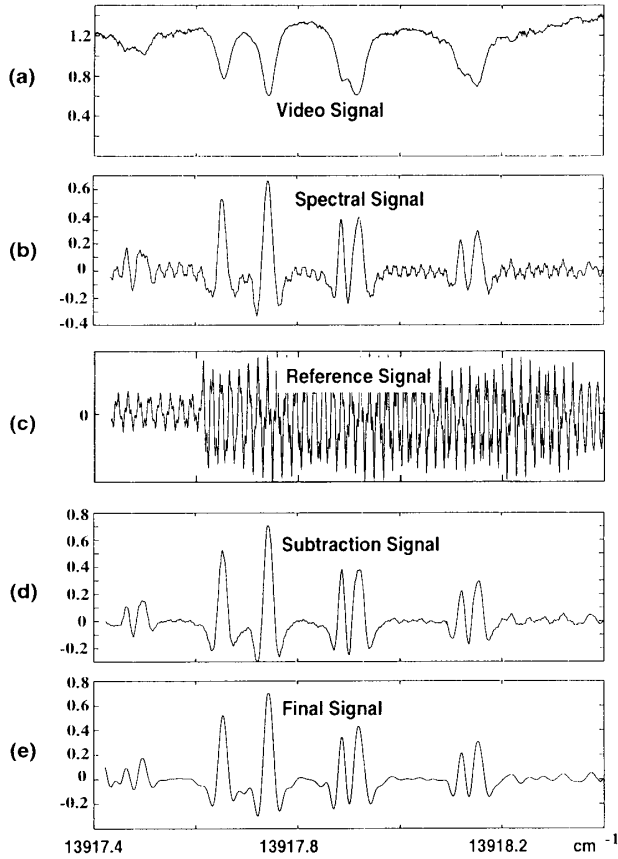


図 4: Absorption Spectrum of ICl with 12 m Cell.

れたものと見積もった。

2.4 波数測定およびその較正法

ピーク波数を決定するには、既に標準スペクトルとして認知されている原子スペクトル^{14), 15)}や、分子スペクトル^{16), 17)}フリンジ信号が一般的に用いられる。最近では、He-Ne レーザを基準光源にしたマイケルソン型干渉計によって波数を計測する光波長計が開発され、その絶対波数精度も 0.5 ppm と高確度な製品も市販されるようになった¹⁸⁾。ドップラー限界の分光スペクトルであれば、平均化の手法を用い 1 桁精度を向上させることとなり十分実用になる精度であると考えられる^{19), 20)}。

光波長計を利用して原子・分子の吸収線の波数を決定する方法としては、スペクトルの中心波数にレーザ発振波数を安定化し、そのときの波数値を読み込む方法が考えられる。しかし、この方法はスペクトルの波数を決定できても、同時にそのプロファイルまでを計測することはできない。特に、歪んだスペクトル、重なったスペクトル、S/N 比の低いスペクトルの場合は、弁別信号のゼロクロス点がスペクトルの中心波数と一致しない場合もあり、計測されたレーザ波数の誤差が大きくなる。ま

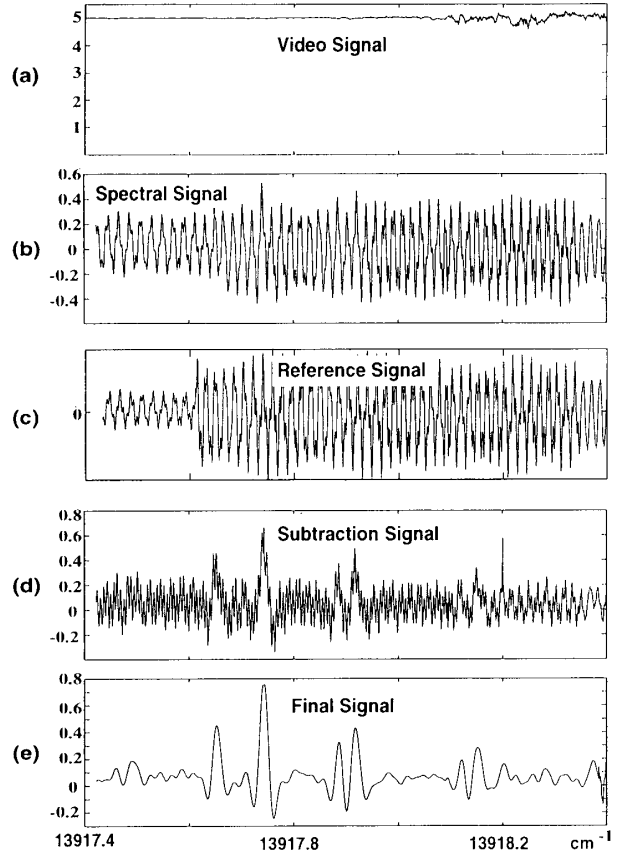


図 5: Absorption Spectrum of ICl with 20 cm Cell.

た、この形式の光波長計では応答時間が遅いため、スペクトル密度の濃い(スペクトルの本数の多い)場合などは、全てのピーク波数を決定するのに長い時間を要してしまう。これらの問題点を解決するために、光波長計とファブリペロー干渉計によるフリンジ信号を用い、計算機による平均化の手法を取り入れた波数較正法を考案した。

信号観測時のタイミングチャートを図 6 に示す。 M_j は、測定開始から j 番目のフリンジの位置を示すクロックを表す。波長計より読み込んだ波数を $\nu_0, \nu_1, \nu_2, \dots, \nu_i, \dots$ とし、そのときのクロックを $W_0, W_1, W_2, \dots, W_i, \dots$ とする。図 6 に示す通り、 j と $j+1$ 番目のフリンジに近接した波長計による波数読み込み時のクロックを W_i とすれば、波長計による波数は、

$$\begin{bmatrix} \nu_0 \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ \nu_i \\ \cdot \\ \cdot \\ \nu_{n-1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & \zeta_0 \\ \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot \\ 1 & \zeta_i \\ \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot \\ 1 & \zeta_{n-1} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} \nu_{m0} \\ \Delta\nu_{FP} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \epsilon_0 \\ \cdot \\ \cdot \\ \epsilon_i \\ \cdot \\ \cdot \\ \epsilon_{n-1} \end{bmatrix} \quad (2)$$

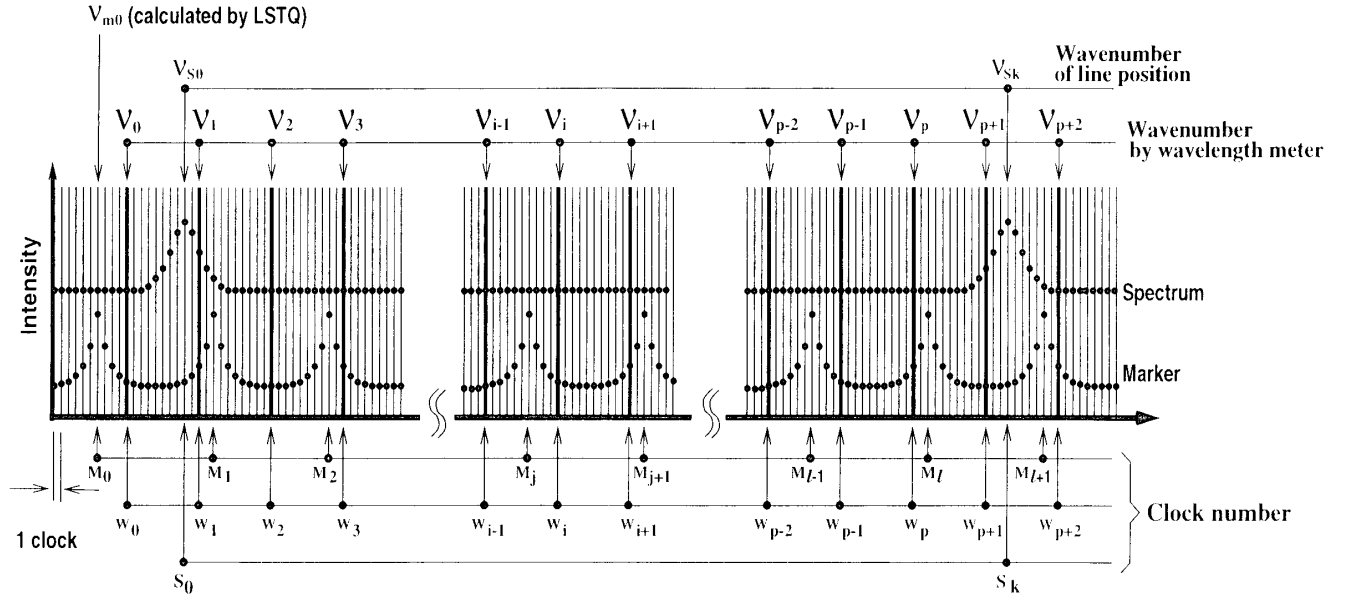


図 6: A Time Chart of a Recording Schedule.

$$\zeta_i = j + (W_i - M_j) / (M_{j+1} - M_j) \quad (3)$$

と表される。ここで ν_{m0} は掃引時最初に現れるフリンジのピーク波数であり、 $\Delta\nu_{FP}$ はフリンジ間隔である。 ζ_i は、 W_i の値で規格化されたマーカー番号である。 ϵ_i は誤差を表す。したがって、偏差 $\sum \epsilon_i^2$ が最小になるように ν_{m0} と $\Delta\nu_{FP}$ を決定することにより掃引開始後最初に現れたフリンジ信号の絶対波数とフリンジ間隔が求まる。

クロック番号 S_k に対応するスペクトル信号 k の波数 ν_{sk} は

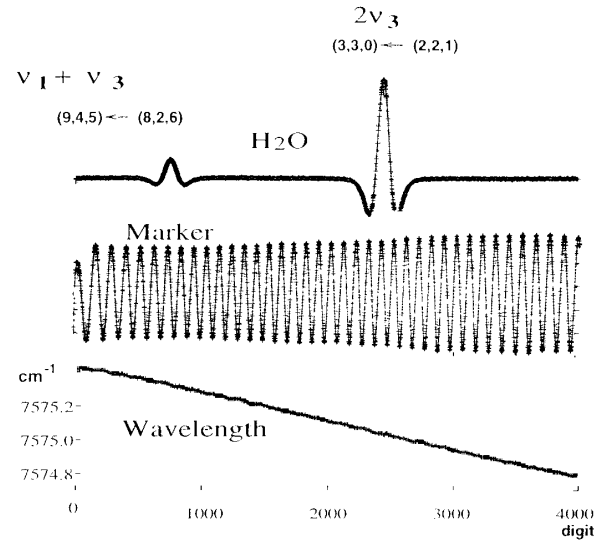
$$\nu_{sk} = (\nu_{m0} \pm \delta\nu_{m0}) + (\Delta\nu_{FP} \pm \delta\nu_{FP}) \times \xi_k \quad (4)$$

$$\xi_k = l + (S_k - M_l) / (M_{l+1} - M_l) \quad (5)$$

となる。

$\delta\nu_{m0}$, $\delta\nu_{FP}$ は、標準誤差を表す。また、 l はスペクトル信号 k の直前のフリンジ番号を表す。

考案した波数較正法を評価するために、 H_2O の振動回転スペクトルを測定した。対象とした遷移は、R.A.Tothにより標準スペクトルとして与えられている $\nu_1 + \nu_3$ (J, K_a, K_c) = (9,4,5) \leftarrow (8,2,6) と $2\nu_3$ の (3,3,0) \leftarrow (2,2,1) 遷移である¹⁶⁾。図 7 に測定した吸収スペクトルの 2 次微分信号を示す。マーカー間隔 0.0617 cm^{-1} 、掃引範囲 0.6 cm^{-1} とし、測定点は 1 クロックパルス毎に取り込み全部で 4000 点とした。波長計により読み込む波数値は 10 クロックパルス毎としたので、全部で 400 点となる。8 回の測定の平均値を表 1 に示す。FM 幅 120 MHz では、 ν_{m0} は $7575.35247(13)$

図 7: Recorder Trace of H_2O , the Fringe Markers and the Observed Wavenumber.

cm^{-1} 、 $\Delta\nu_{FP}$ は $0.016675(7) \text{ cm}^{-1}$ であった。表 1 より、決定したスペクトルピーク波数は、文献値¹⁶⁾とも標準誤差の範囲で一致している。

さらに $0.78 \text{ }\mu\text{m}$ 領域において、波数決定精度を評価するために、Rb の $5^2S_{1/2} - 5^2D_{5/2}$ の 2 光子遷移を取り上げた。これは、Nez²¹⁾らによって 10^{-11} の精度で絶対波数が与えられている。測定はチタンサファイアレーザを用い、 0.07 cm^{-1} の範囲を 4000 ステップの掃引信号を加え測定した。レーザ光は光チョッパーにより

表 1: Wavenumber Measurement of H₂O Lines with Proposed Method

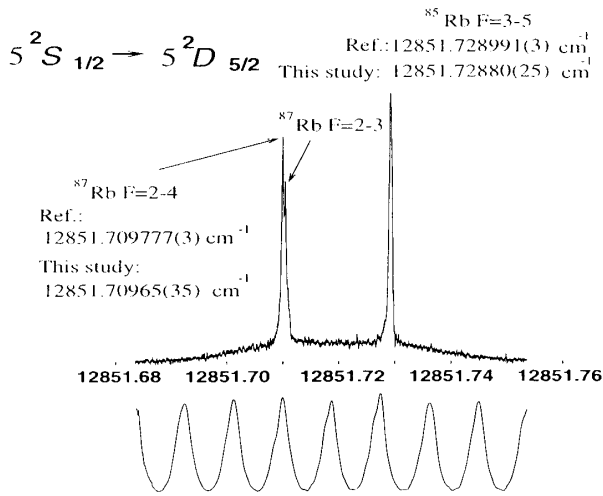
Upper			Lower			Ref.	Obs.	
J	K_a	K_c	J	K_a	K_c		Average	Lock
FM width = 120 MHz								
3	3	0	2	2	1	7575.03512	7575.0359(4)	7575.0355(25)
9	4	5	8	2	6	7575.3220	7575.3224(4)	7575.3235(25)
FM width = 350 MHz								
3	3	0	2	2	1	7575.03512	7575.0362(7)	7575.0357(62)
9	4	5	8	2	6	7575.3220	7575.3233(7)	7575.3223(57)

* $\Delta\nu_{FP}=0.016675(7)$, $\nu_{m0}=7575.35247(13)$ at FM width of 120 MHz in cm^{-1}

$\Delta\nu_{FP}=0.016732(13)$, $\nu_{m0}=7575.43593(26)$ at FM width of 350 MHz

表 2: Wavenumber of the $5^2S_{1/2} - 5^2D_{5/2}$ Transition in Rb

Hyperfine Component	Ref.	This work	Difference
$^{85}\text{Rb } F=3 \rightarrow 5$	12 851.728 991(3)	12 851.728 80(25)	0.000 19
$^{87}\text{Rb } F=2 \rightarrow 4$	12 851.709 777(3)	12 851.709 65(35)	0.000 12
in cm^{-1}			

図 8: The $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2D_{5/2}$ Two-photon Spectrum in Rb.

変調し、位相検波増幅器により検出したスペクトルを図 8 に示す。フリンジ信号は $\text{FSR } 0.01 \text{ cm}^{-1}$ の Fabry-Perot 干渉計により発生させた。測定結果は、 $\nu_{m0} = 12851.75570(5)$, $\Delta\nu_{FP} = 0.010017(11) \text{ cm}^{-1}$ であった。表 2 には決定したスペクトルのピーク波数と文献値²¹⁾を示す。文献値とは 2×10^{-8} の絶対精度で一致し

た。無変調のレーザを用いた場合は、測定される波数のバラツキが小さくなるため、変調時の計測より確度が高いと言える。

3 スペクトル測定例

3.1 二重共鳴スペクトル

光 - 光二重共鳴 (OODR) 効果とは、2 台のレーザを用い光と物質との非線形相互作用を生じさせる効果である。分布数が減少する高い励起状態間の弱い遷移であっても飽和効果により、検出できるので新しい波数領域の周波数標準スペクトルが期待できる。また、ドップラー幅内で重なった複雑なスペクトルの中にある特定な遷移を選択的に観測することも可能である。この二重共鳴効果を利用しスペクトル線の帰属なども行なわれる。また工学的な応用として、励起状態間の遷移を利用した超狭帯域光フィルタなどを実現することもできる²²⁾。

放電気体中に原子・分子のエネルギー状態に共鳴する光を入射させると放電状態が変化し、放電電流の変化としてスペクトルを検出できる。この効果を光ガルバノ効果 (OG 効果) という²³⁾⁻²⁵⁾。この効果を測定するにあたり光検出器は不必要となるため、装置が簡便になる。

光 - 光二重共鳴測定システムを図 9 に示す。二台の

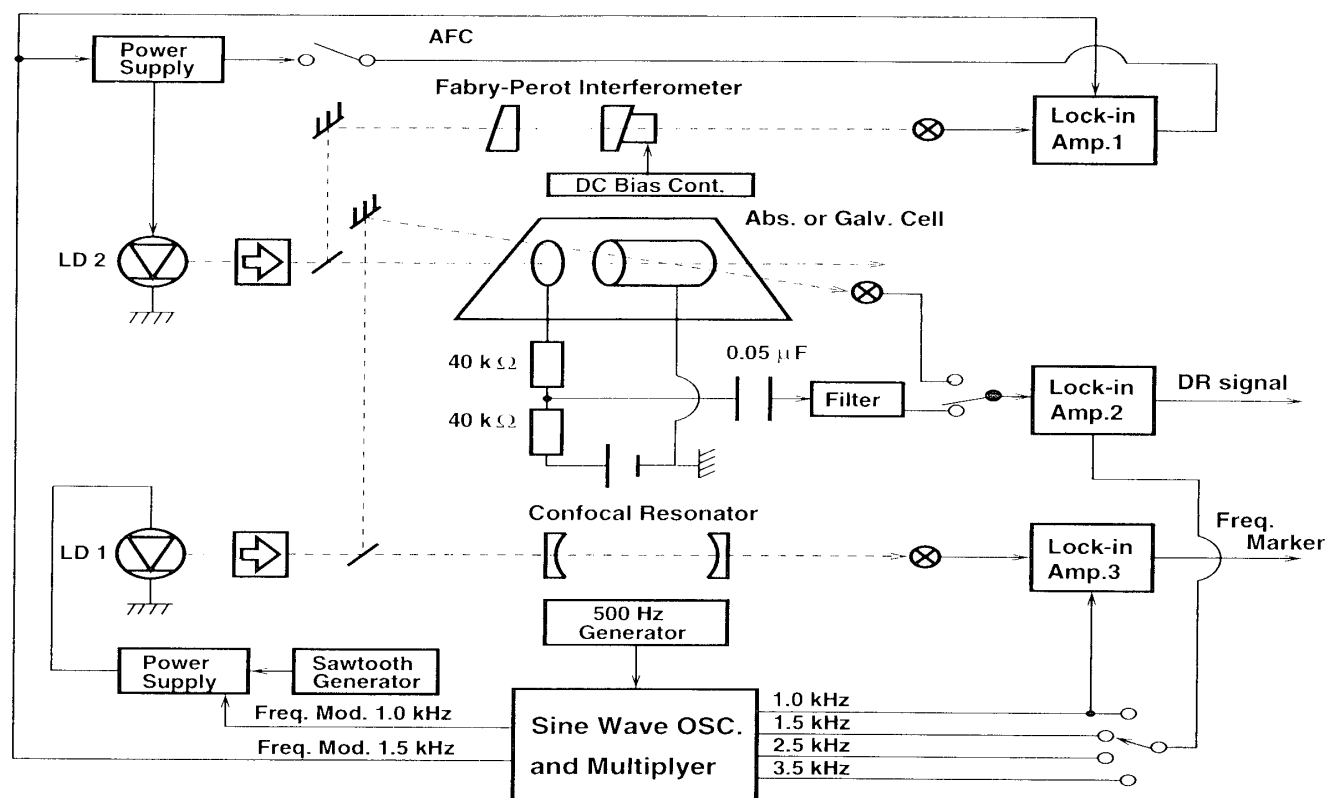


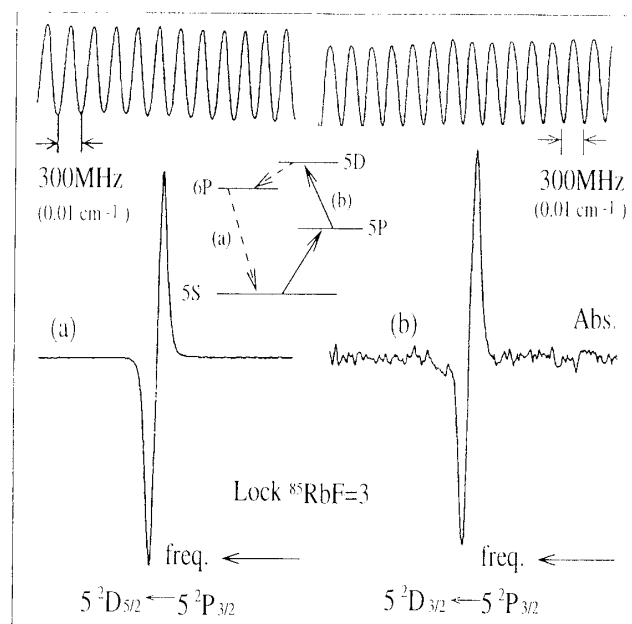
図 9: Measurement System of OGDR.

レーザはそれぞれ 1.0 kHz、1.5 kHz で FM 変調を施した場合を示している。スルー型の吸収セル又はガルバノ放電管にレーザ光を同方向、または、逆方向入射させる。一台のレーザは PZT を備えた Fabry-perot 共振器のフリンジ信号を参照した周波数安定化法により周波数ロックできるようにした。吸収信号成分は、ポンプ光の変調周波数成分を検出した。この方式では、吸収セルの側面に光検出器を置き、ポンプ光とプローブ光の交差点に生じる蛍光を検出して二重共鳴信号を得ることもできた。

ガルバノ二重共鳴 (OGDR) 効果の場合は、プローブ光による信号とポンプ光による信号はいずれも放電電流の変化となり、独立に検出できない。そこで、放電電流の変化分の内、和周波分を検出することにより、OGDR 信号を得た。

3.1.1 Rb 原子の OODR スペクトル

D_2 線の ^{85}Rb $F = 3$ にポンプ光を安定化して検出される $5D \leftarrow 5P$ 遷移の二重共鳴スペクトルの代表例を図 10 に示す。測定システムは、図 9 のガルバノ放電管を Rb セルに置き換えたシステムで行なった。(a) は

図 10: OODR Signal at ^{85}Rb $F = 3$ Pump.

$5^2D_{5/2} \leftarrow 5^2P_{3/2}$ 遷移の順方向入射による蛍光スペクトル 1 次微分信号を示し、(b) は $5^2D_{3/2} \leftarrow 5^2P_{3/2}$ 遷移の逆方向入射による吸収スペクトルを示す。この二重共鳴スペクトルの線幅はどちらも 170 MHz であり、差は認められなかった。これらのスペクトル幅は、2 台のレーザの発振線幅と FM 幅に依存していると考えられる。

また、図 11 には、 ^{85}Rb $F = 3$ と、そこから

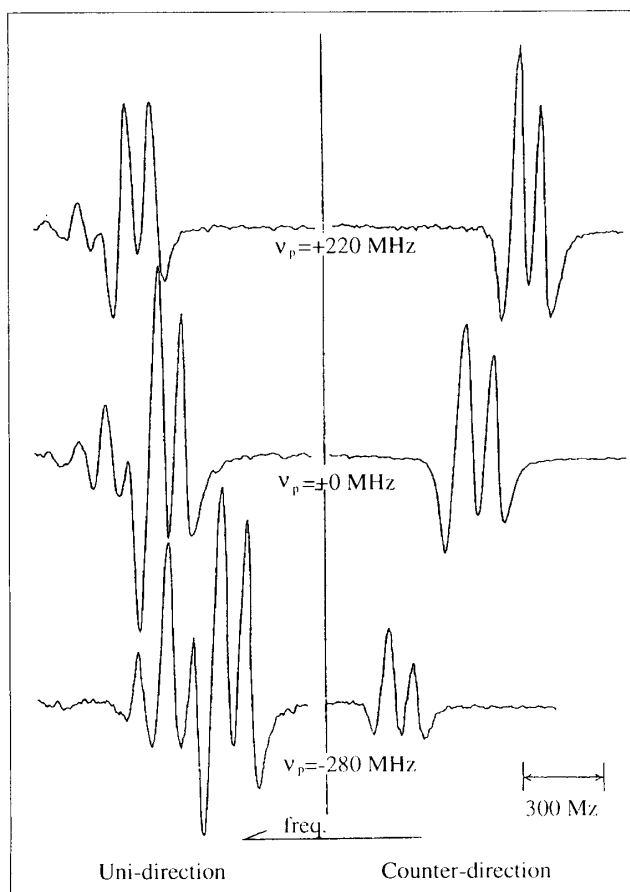


図 11: Off Resonance Effect of $5^2D_{5/2} \leftarrow 5^2P_{3/2}$ Transition.

+220 MHz, -280 MHz シフトした位置を励起したときの $5^2D_{5/2} \leftarrow 5^2P_{3/2}$ 遷移の二重共鳴スペクトルを示す。吸収線の中心からシフトした波数位置を励起すると、それにともない二重共鳴スペクトルがシフトするオフレゾナンスの効果が観測された。周波数シフト量を $\Delta\nu_s/\Delta\nu_p$ で表すと $5^2D_{5/2} \leftarrow 5^2P_{3/2}$ 遷移では、

順方向入射	$\Delta\nu_s/\Delta\nu_p = 0.911 \pm 0.098$
逆方向入射	$\Delta\nu_s/\Delta\nu_p = -0.855 \pm 0.083$

であった。

3.1.2 Kr 原子の OGDR 効果

基本的な光ガルバノ二重共鳴信号について、Kr の $5P'_{11} \leftarrow 5S'_{00}$ 遷移の実験結果を用いて説明する。超微細構造を示す Kr の同位体は ^{83}Kr だけであり、 J が低い場合単純である。 $5P'_{11} \leftarrow 5S'_{00}$ (806.174 nm) の遷移においては準安定状態である $5S'_{00}$ は $J = 0$ であるため超微細構造が生じない。 $5P'_{11}$ は、 $J = 1$ であるため 3 つの準位に分裂し、 $F=11/2 \leftarrow 9/2$, $9/2 \leftarrow 9/2$, $7/2 \leftarrow 9/2$ の超微細構造のスペクトルが現れる。この効果を調べるに当たって 806.174 nm のレーザを 2 台用意し OGDR 信号を観測した。図 12 は、 $f_1 + f_2$ で検波した二重共鳴スペクトルである。(a) は 1 次微分のガルバノ信号である。スペクトル幅を見積もると 700 MHz

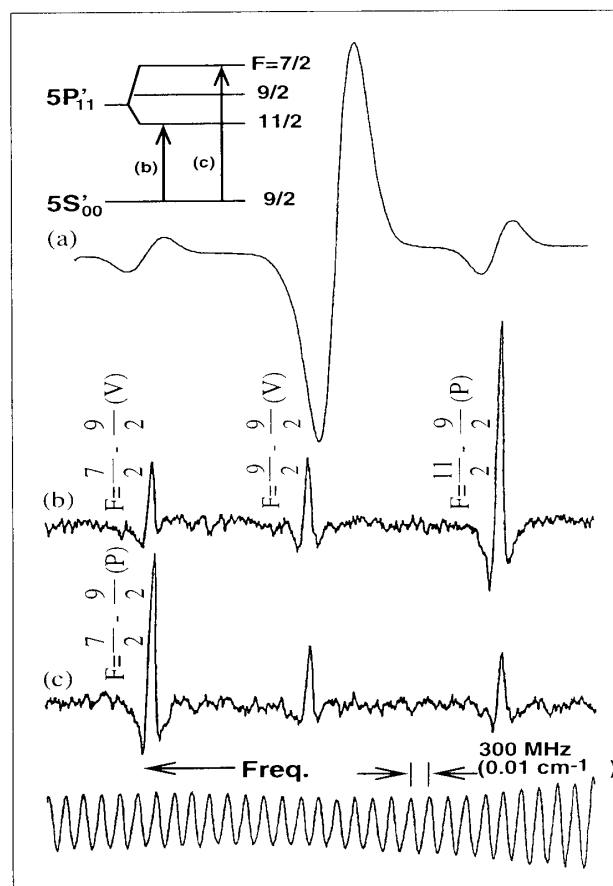
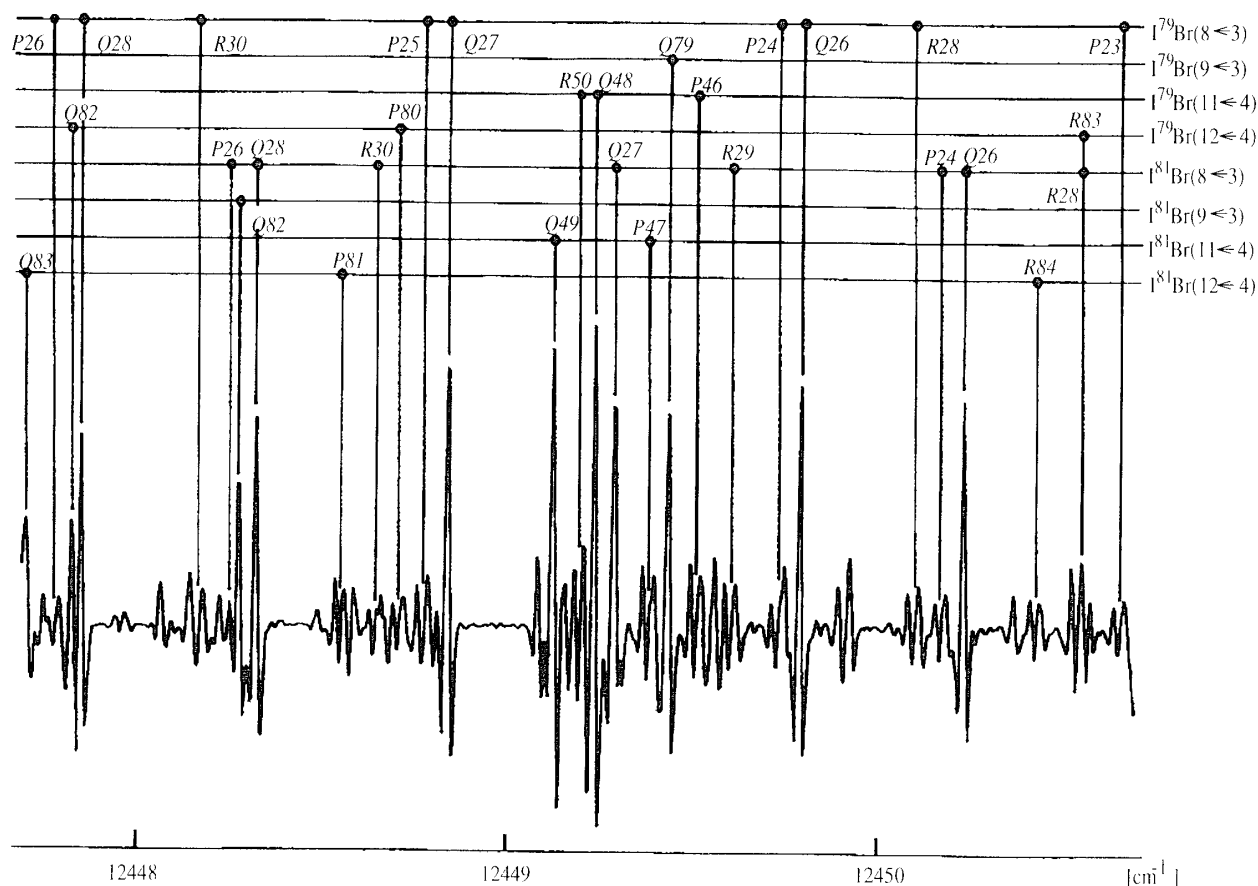


図 12: OGDR Signal of Kr $5P'_{11} \leftarrow 5S'_{00}$ (a) Non-OGDR, (b) Pump at $F = 11/2 \leftarrow 9/2$ Transition, (c) Pump at $F = 7/2 \leftarrow 9/2$ Transition.

程度である。中央のスペクトルは ^{83}Kr $F = 7/2 \leftarrow 9/2$ 遷移を含む *even* Kr のガルバノ信号である。(b) は一番右の $11/2 \leftarrow 9/2$ にロックした場合であり、ロックした部分のスペクトルが一番強い強度となっている。図中の (V), (P) は OGDR のタイプを示したものである。

図 13: Observed Spectrum of IBr in the Region of 12404~12406 cm^{-1}

検出されるスペクトルは2次微分信号であることが分かる。同様に(c)は $F = 7/2 \rightarrow 9/2$ にロックした場合の OGDR 信号である。

また、 $5P'_{01}-5S'_{00}-5P'_{11}$ 準位系の測定を行ない、偶数の質量数を持つ同位体種から核スピンを持つ ^{83}Kr を完全に分離することができた。観測した超微細構造の分裂幅より最小二乗法を用いて、核磁気相互作用定数 A 、核四極子相互作用定数 B を求めた。結果を表3に示す。X.Husson⁽²⁶⁾⁻⁽²⁸⁾らにより報告された、核スピンをもつ同位体を濃縮して決定した A 、 B 定数とは、誤差範囲内で一致した。

3.2 IBr 分子の $A^3\Pi_1 \leftarrow X^1\Sigma^+$ 遷移スペクトルの測定

12448.7~12450.7 cm^{-1} におけるスペクトルの測定例を図13に示す。 Q -枝は強い一本のスペクトルとして、 P -, R -枝は弱いダブルットとして観測された。測定は光路長 12 m のホワイトタイプセルを用い、室温で行なった。また、FM 変調幅 400 MHz、FM 周波数 15 Hz の波源変調法で2次微分信号を検出した。

表 3: Nuclear Magnetic Dipole Interaction Constants A and Nuclear Quadrupole Interaction Constants B Calculated from $\text{Kr } 5P'_{11} \leftarrow 5S'_{00}$, $5P'_{01} \leftarrow 5S'_{00}$

		This Work	Reference	
$5P'_{01}$	A	225.5(7)	226.0(3)	26)
	B	23.3(51)	22.0(20)	27)
$5P'_{11}$	A	-577.5(12)	-576.89(120)	28)
	B	22.5(87)	22.8(30)	28)

in MHz

11350~13400 cm^{-1} 領域で測定を行ない、 ^{179}Br 、 ^{181}Br についてそれぞれ 65 バンドに属する 11000 本のスペクトルを帰属した⁶⁾⁻⁸⁾。

4 結論

近赤外線領域における光波長・光周波数標準に関する研究を推進するために、近赤外線領域のCW レーザ光源として開発された GaAs 半導体レーザーとチタンサファイ

アレーザを用い、波数掃引特性に優れ、高分解能且つ波数較正が容易な高精度汎用分光計測装置を開発した。

また、スペクトル測定例として、OODR, OGDRの周波数安定度の高い、高S/N比のドップラーフリースペクトルの検出例を示した。また、ドップラー幅スペクトルの例として、IBr分子の電子遷移スペクトル例を示した。

本装置を用いて、ハロゲン化沃素分子の電子スペクトル^{7), 8), 29)}や分子の倍音や結合音のスペクトル²⁰⁾を測定し、精度の良い分光定数を決定することにより、近赤外線領域の標準スペクトルアトラスを確立することができた。ハロゲン化沃素分子の標準スペクトルアトラスについては、本紀要³⁰⁾を参照されたい。

References

- 1) B.Dahmani, L.Hollberg, and R.Drullinger, *Opt.Lett.* **12**, 876-878 (1987).
- 2) K.Kuboki and M.Ohtsu, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-23**, 388-394 (1987).
- 3) J.A.Coxon, R.M.Gordon, and M.A.Wickramaaratchi, *J.Mol.Spectrosc.* **79**, 363-379 (1980).
- 4) J.A.Coxon and M.A.Wickramaaratchi, *J.Mol.Spectrosc.* **79**, 380-395 (1980).
- 5) L.-E.Selin, *Ark.Fys.* **27**, 479-513 (1962).
- 6) N.Nishimiya, T.Yukiya, and M.Suzuki, *J. Mol. Spectrosc.* **163**, 43-57 (1994).
- 7) N.Nishimiya, T.Yukiya, and M.Suzuki, *J. Mol. Spectrosc.* **173**, 8-13 (1995).
- 8) T.Yukiya, N.Nishimiya, and M.Suzuki, *J. Mol. Spectrosc.* **182**, 271-279 (1997).
- 9) 山口 静夫, 鈴木正夫, 分光研究. **31**, 242-250 (1982).
- 10) 山口 静夫, 鈴木正夫, 分光研究. **31**, 256-261 (1982).
- 11) 西宮信夫, 分光研究. **40**, 293-295 (1991).
- 12) 西宮信夫, 鈴木正夫, 渡辺忠一, 東京工芸大学紀要. **14**, 47-56 (1991).
- 13) R.B.Lam and T.L.Isenhour, *Anal.Chem.* **53**, 1179-1182 (1981).
- 14) D.E.Gray. "American Institute of Physics". McGraw-Hill, (1960).
- 15) F.M.Phelps. "M.I.T. Wavelength Tables". Vol.2 Wavelengths by Element MIT Press, (1982).
- 16) R.A.Toth, *Appl.Opt.* **33**, 4851-4867 (1994).
- 17) R.A.Toth, *J.Mol.Spectrosc.* **166**, 176-183 (1994).
- 18) H.Sasada, *J. Mol. Spectrosc.* **165**, 588-589 (1994).
- 19) T.Yoshida and H.Sasada, *J. Mol. Spectrosc.* **153**, 208-210 (1992).
- 20) N.Nishimiya, T.Yukiya, T.Ohtsuka, and M.Suzuki, *J. Mol. Spectrosc.* **182**, 309-314 (1997).
- 21) F.Nez, F.Biraben, R.Felder, and Y.Millerioux, *Optics Comm.* **102**, 432-438 (1993).
- 22) J.A.Gelbwachs and Y.C.Chan, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-24**, 709-711 (1988).
- 23) H.A.Safia and X.Husson, *J.Phys.* **45**, 863-865 (1984).
- 24) R.B.Green, R.A.Keller, G.G.Luther, P.K.Scenck, and J.C.Travis, *Appl.Phys.Lett.* **29**, 727-729 1976.
- 25) 鈴木 隆則, 分光研究. **32**, 367-382 (1983).
- 26) H.Gerhardt, F.Jeschonnek, W.Makat, E.Matthias, H.Rinneberg, F.Schneider, A.Timmermann, R.Wenz, and P.J.West, *Hyperfine Interactions.* **9**, 175-180 (1981).
- 27) J.R.Brandenberger, *Phys.Rev.A.* **39**, 64-68 (1989).
- 28) X.Husson, J-P Grandin and H.Kucal, *J. Phys.B.* **12**, 3883-3889 (1979).
- 29) 行谷時男, 西宮信夫, 鈴木正夫, 東京工芸大学工学部紀要. **18**, 52-59 (1995).
- 30) 行谷時男, 西宮信夫, 鈴木正夫, 東京工芸大学工学部紀要. **20** (1998).